

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Akira IGARASHI, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP00/01600

INTERNATIONAL FILING DATE: 16 March 2000

FOR: CATALYSTS FOR WATER GAS SHIFT REACTION, METHOD FOR REMOVING
CARBON MONOXIDE IN HYDROGEN GAS AND FUEL CELL GENERATION
SYSTEM**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

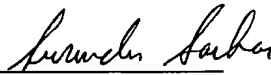
In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO.</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
JAPAN	11/73270	18 March 1999
JAPAN	11/194104	08 July 1999

A certified copy of the corresponding Convention application(s) was submitted to the International Bureau in PCT Application No. **PCT/JP00/01600**. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

**22850**


Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

JP00/01600

11.04.00

日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

09/720262

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

1999年 7月 8日

④

出願番号

Application Number:

平成11年特許願第194104号

出願人

Applicant(s):

松下電工株式会社

REC'D 26 MAY 2000

WIPO

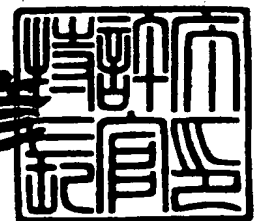
PCT

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 5月12日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤隆彦



出証番号 出証特2000-3035035

【書類名】 特許願

【整理番号】 99P06230

【提出日】 平成11年 7月 8日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01J 23/42

【発明の名称】 水素ガス中のCO除去用触媒

【請求項の数】 7

【発明者】

 【住所又は居所】 埼玉県浦和市内谷 6-3-5-111

 【氏名】 五十嵐 哲

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区本町 2-12-14
 六郷住宅 903号

 【氏名】 東 洋和

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1048番地松下電工株式会社内

 【氏名】 溝渕 学

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1048番地松下電工株式会社内

 【氏名】 橋本 登

【特許出願人】

 【識別番号】 000005832

 【氏名又は名称】 松下電工株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100087767

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 西川 惠清

 【電話番号】 06-6345-7777

【選任した代理人】

【識別番号】 100085604

【弁理士】

【氏名又は名称】 森 厚夫

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第 73270号

【出願日】 平成11年 3月18日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 053420

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9004844

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水素ガス中のCO除去用触媒

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ジルコニア担体に、少なくとも白金を担持させて成ることを特徴とする水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項2】 上記白金の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とする請求項1に記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項3】 ジルコニア担体に上記白金の他に、レニウムを担持させて成ることを特徴とする請求項1又は2に記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項4】 上記レニウムの担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とする請求項3に記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項5】 ジルコニア担体に白金の他に、イットリウム、カルシウム、クロム、サマリウム、セリウム、タングステン、ネオジウム、プラセオジム、マグネシウム、モリブデン、ランタンから選ばれる少なくとも一種の金属を担持させて成ることを特徴とする請求項1乃至4のいずれかに記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項6】 上記請求項5の金属の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とする請求項5に記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【請求項7】 ジルコニア担体に少なくとも白金を担持させた後に、熱水処理が行われていることを特徴とする請求項1乃至6のいずれかに記載の水素ガス中のCO除去用触媒。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、水素リッチなガスに含まれるCOを選択的に水性ガスシフト反応によって転化除去するために用いられるCO除去用触媒に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

炭化水素系の気体や液体、固体、あるいはメタノール等のアルコールなど、燃料を水蒸気と水蒸気改質反応させて得られる水素リッチな改質ガスは、燃料電池発電システムにおいて、燃料水素の供給源として利用されている。燃料電池は、使用する燃料や電解質の種類、作動温度などで分類されるが、固体高分子型燃料電池は作動温度が低く、出力密度が高く、小型軽量化や作動時間の短縮化が期待できるので、自動車、小型発電器、家庭用コジェネレーションシステム等への利用が考えられている。

【0003】

ここで、固体高分子型燃料電池は、パーフルオロスルホン酸系の高分子膜をプロトン伝導性固体電解質として使用するものであり、50～100℃の温度で作動する。しかしこのように固体高分子型燃料電池は低温作動のため、水素リッチな改質ガス中に含まれる不純物によって被毒され易い。特に電極に使用されている白金はCOによって被毒され易く、改質ガス中に所定濃度以上のCOが含まれていると発電性能が低下する。

【0004】

そこで、燃料を水素リッチな改質ガスに改質する改質器の後段にCO除去装置を設け、COを選択的に水性ガスシフト反応によって転化除去して、CO濃度を1%以下に低減する必要がある。そしてこのCO除去のために用いられるCO除去用触媒として、従来から一般にCu-Zn系触媒が使用されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしCu-Zn系触媒は活性が低いため、COを1%以下に低減させるためには大量に使用する必要があり、また活性が経時劣化するため、定期的に触媒交換をする必要があるという問題があった。従って、従来のCu-Zn系触媒では、起動と停止が繰り返して行なわれる小型・可搬型の燃料電池システムには適用することが難しいものであった。

【0006】

本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、水素ガス中のCOを広い温度範囲で効率良く除去することができる水素ガス中のCO除去用触媒を提供することを目的とするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明の請求項1に係る水素ガス中のCO除去用触媒は、ジルコニア担体に、少なくとも白金を担持させて成ることを特徴とするものである。

【0008】

また請求項2の発明は、上記請求項1において、上記白金の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とするものである。

【0009】

また請求項3の発明は、ジルコニア担体に上記白金の他に、レニウムを担持させて成ることを特徴とするものである。

【0010】

また請求項4の発明は、上記レニウムの担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とするものである。

【0011】

また請求項5の発明は、ジルコニア担体に白金の他に、イットリウム、カルシウム、クロム、サマリウム、セリウム、タングステン、ネオジウム、プラセオジウム、マグネシウム、モリブデン、ランタンから選ばれる少なくとも一種の金属を担持させて成ることを特徴とするものである。

【0012】

また請求項6の発明は、上記請求項5の金属の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とするものである。

【0013】

また請求項7の発明は、上記請求項1から6の水素ガス中のCO除去用触媒に、さらに熱水処理が行われていることを特徴とするものである。

【0014】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を説明する。

【0015】

本発明において触媒担体としてジルコニア担体を用いるものであり、ジルコニア担体は例えば出発原料である水酸化ジルコニウム水和物を焼成することによって調製することができる。

【0016】

このジルコニア担体に白金を担持させるにあたっては、ジルコニア担体に白金の塩の水溶液を加え、これを攪拌しながら蒸発乾固させ、得られた乾固形物を加熱して乾燥し、この乾燥物を粉砕した後に焼成することによって行なうことができる。そしてこれをプレスしてペレット状にし、得られたペレットを0.5～1.0mmの粒径に粉砕することによって、ジルコニア担体に白金を担持させたCO除去用触媒として使用することができるものである。

【0017】

ここで、CO除去用触媒において、白金の担持量は、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%の範囲が好ましい。白金の担持量が0.1重量%未満の場合は、水性ガスシフト反応によって H_2 中のCOを CO_2 に転化させて除去する際の触媒活性を十分に得ることが困難であり、また白金の担持量が10重量%を超えても触媒活性はそれ以上向上せず、コスト的に不利になる。

【0018】

ジルコニア担体には白金の他に他の金属を担持させてCO除去用触媒を得ることもできる。この他の金属としては、レニウムや、イットリウム、カルシウム、クロム、サマリウム、セリウム、タングステン、ネオジウム、プラセオジウム、マグネシウム、モリブデン、ランタンを用いることができるものであり、これらの中から一種あるいは二種以上を選んでジルコニア担体に担持させることができる。

【0019】

白金の他に上記の金属をジルコニア担体に担持させたCO除去用触媒を調製するにあたっては、金属としてイットリウム、カルシウム、クロム、サマリウム、

セリウム、タングステン、ネオジウム、プラセオジウム、マグネシウム、モリブデン、ランタンを用いる場合には、塩化白金酸水溶液と共にこれらの金属の塩の水溶液を加え、これを攪拌しながら蒸発乾固させ、得られた乾固形物を加熱して乾燥し、この乾燥物を粉砕した後に焼成することによって、行なうことができる。そしてこれをプレスしてペレット状にし、得られたペレットを0.5～1.0 mmの粒径に粉砕することによって、ジルコニア担体に白金とこれらの金属を担持させたCO除去用触媒として使用することができるものである。

【0020】

また白金の他に金属としてレニウムをジルコニア担体に担持させたCO除去用触媒を調製する場合には、まずレニウムの塩の水溶液をジルコニア担体に加え、これを攪拌しながら蒸発乾固させ、得られた乾固形物を加熱して乾燥し、この乾燥物を粉砕した後に焼成することによって、レニウムをジルコニア担体に担持させる。このようにしてレニウムをジルコニア担体に担持させた後、上記と同様にして白金をジルコニア担体に担持させることによって、白金とレニウムをジルコニア担体に担持させたCO除去用触媒を得ることができるものである。

【0021】

白金の他に上記の各金属をジルコニア担体に担持させることによって、CO除去の触媒活性を高めることができると共に、 H_2 中のCOを CO_2 に転化させて除去する際に、COが H_2 と反応してメタン化するメタネーション反応が起こることを防止することができるものである。特に上記金属としてレニウムを用いることによって、CO除去の触媒活性を高める効果を高く得ることができる。ここで、CO除去用触媒において、上記の金属の担持量は、ジルコニア担体重量に対して、金属に換算して0.1～10重量%の範囲が好ましい。上記の金属の担持量が0.1重量%未満の場合は、メタネーション反応を防止する効果を十分に得ることが難しく、また上記の金属の担持量が10重量%を超えてもメタネーション反応を防止する効果はそれ以上向上せず、コスト的に不利になる。

【0022】

また、上記の実施の形態では、ジルコニア担体に白金等の塩の水溶液を加えて蒸発乾固させた後に加熱乾燥し、これを焼成することによって、白金等を担持さ

せるようにしたが、加熱乾燥の後に熱水処理を施してCO除去用触媒を調製することもできる。すなわち、上記方法にて得られたジルコニア担体に白金、その他金属を担持させた触媒を、熱水（約100℃）中で約1時間攪拌し、その後触媒を沈殿させて濾過を行う。そして、この操作を数回繰り返した後、乾燥させ、プレスしてペレット状にし、得られたペレットを0.5～1.0mmの粒径に粉碎することによって、ジルコニア担体に白金とその他金属を担持させたCO除去用触媒を得ることができるものである。このように熱水処理を行う場合、焼成は行っても行わなくてもいずれでもよい。

【0023】

このように熱水処理を施すことによって、触媒中の塩素イオン等を除去することができ、CO除去の触媒活性をさらに高めることができる。

【0024】

【実施例】

次に、本発明を実施例によって具体的に説明する。

【0025】

（実施例1～5）

水酸化ジルコニウムn水和物（三津和化学薬品株式会社製）を、焼成炉を用いて、60ミリリットル／分の空気気流中で500℃まで1時間昇温し、同温度で1時間保持する条件で焼成処理することによって、酸化ジルコニウムにし、これをジルコニア担体とした。

【0026】

上記のようにして得られたジルコニア担体を湯浴上の蒸発皿に所定量入れ、これに純水を混ぜて馴染ませた。ここに塩化白金酸六水和物（ナカライテスク株式会社製）の水溶液を加え、さらに純水を加えて所定濃度になるようにした。これを湯浴上で攪拌しながら、水分の蒸発に伴って蒸発皿の壁面に付着する金属塩を純水で洗い落とし、1時間蒸発乾固させ、得られた乾固形物を約100℃で15時間以上乾燥させた。乾燥物をメノウ乳鉢で粉末状に砕いた後、焼成炉を用いて、60ミリリットル／minの空気気流中で500℃まで1時間昇温し、同温度で1時間保持する条件で焼成処理した。次に、手動式油圧圧縮機を用いて約360

0 kg/cm²の圧力で10秒間プレスし、得られたペレットを0.5～1.0 mmの粒径に粉碎して、ジルコニア担体に3.0重量%の白金を担持させたCO除去用触媒を得た。

【0027】

ここで、塩化白金酸水溶液の添加量を調整することによって、白金の担持量が表1のようになる実施例1～5のCO除去用触媒を調製した。

【0028】

【表1】

	白金担持量
実施例1	0.5重量%
実施例2	1.0重量%
実施例3	3.0重量%
実施例4	5.0重量%
実施例5	8.0重量%

【0029】

上記の実施例1～5のCO除去用触媒について、CO除去性能を評価した。評価実験は次のようにして行なった。まずCO除去用触媒0.7ミリリットルを反応管に充填し、水素を流しながら500℃まで1時間で昇温し、その後1時間同温度を保持して還元処理を行なった。次にヘリウムを流しながら1時間で200℃まで降温した後、ヘリウムの供給を止め、H₂OとCOをH₂O/CO=1.3のモル比で混合したCO含有ガスを3650SV [1/h] (CO基準)の条件で供給し、反応温度200℃でCO除去反応の実験を開始した。反応が安定した後、反応管の入り口と出口の試料を採取してガスクロマトグラフィ (熱伝導度検出器) によって分析し、COがCO₂に転化されるCO転化率を求めた。また、反応温度を250℃、300℃、350℃に昇温させ、同様に反応が安定した後の試料を採取して分析し、CO転化率を求めた。

【0030】

尚、比較例として、Cu/ZnO触媒 (日揮化学株式会社製「N211」) を使い、300℃で還元処理をするようにした他は、同様にしてCO除去の実験を

行なった。

【0031】

結果を図1に示す。図1の結果にみられるように、各実施例のPt/ZrO₂触媒は比較例のCu/ZnO触媒よりも活性が高いことが確認される。

【0032】

次に、触媒の活性経時変化を測定した。実験は実施例3、実施例4、比較例の触媒について行なった。まず上記の還元処理を行なった後、ヘリウムを流しながら1時間で250℃まで降温させ、ヘリウムを止めて上記と同様にしてCO含有ガスを供給し、反応が安定した後、30分毎に反応管の入り口と出口の試料を採取してガスクロマトグラフィによって分析し、CO転化率を求めた。

【0033】

結果を図2に示す。図2の結果にみられるように、比較例のCu/ZnO触媒は実験開始直後より活性が徐々に劣化しているのに対して、実施例3、4のPt/ZrO₂触媒の活性は劣化しないことが確認される。

【0034】

(実施例6)

上記の(実施例1～5)で調製したジルコニア担体を湯浴上の蒸発皿に所定量入れ、これに純水を混ぜて馴染ませた。ここに塩化白金酸六水和物(ナカライテスク株式会社製)の水溶液と硝酸ランタン六水和物(和光純薬工業株式会社製)の水溶液を加え、さらに純水を加えて所定濃度になるようにした。これを湯浴上で攪拌しながら、水分の蒸発に伴って蒸発皿の壁面に付着する金属塩を純水で洗い落とし、1時間蒸発乾固させ、得られた乾固形物を約100℃で15時間以上乾燥させた。乾燥物をメノウ乳鉢で粉末状に砕いた後、焼成炉を用いて、60ml/分の空気気流中で500℃まで1時間昇温し、同温度で1時間保持する条件で焼成処理することによって、ジルコニア担体に白金を3.0重量%の担持量で、ランタンを5.0重量%の担持量でそれぞれ担持させた。次に、手動式油圧圧縮機を用いて約3600kg/cm²の圧力で10秒間プレスし、得られたペレットを0.5～1.0mmの粒径に粉碎して、ジルコニア担体に白金とランタンを担持させたCO除去用触媒を得た。

【0035】

(実施例 7～16)

硝酸ランタン六水和物の代わりに表 2 の担持金属原料を用い、上記（実施例 6）と同様にして、白金の他に表 3 に示す他の金属をジルコニア担体に担持させた CO 除去用触媒を得た。

【0036】

【表 2】

実施例 6	硝酸ランタン六水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 7	硝酸プラセオジウム (Ⅲ) 六水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 8	硝酸イットリウム n 水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 9	硝酸ネオジウム (Ⅲ) 六水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 10	硝酸カルシウム四水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 11	硝酸サマリウム六水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 12	硝酸クロム (Ⅲ) 九水和物	ナカライテスク株式会社
実施例 13	硝酸セリウム (Ⅲ) 六水和物	ナカライテスク株式会社
実施例 14	硝酸マグネシウム六水和物	和光純薬工業株式会社
実施例 15	パラタングステン酸アンモニウム五水和物	ナカライテスク株式会社
実施例 16	モリブデン酸アンモニウム四水和物	株式会社高純度研究所
実施例 17	過レンニウム酸アンモニウム	三津和化学薬品株式会社

【0037】

【表 3】

	白金担持量(wt%)	担持金属	担持量(wt%)
実施例 6	3.0	ランタン	5.0
実施例 7	3.0	プラセオジウム	5.0
実施例 8	3.0	イットリウム	5.0
実施例 9	3.0	ネオジウム	5.0
実施例 10	3.0	カルシウム	5.0
実施例 11	3.0	サマリウム	5.0
実施例 12	3.0	クロム	5.0
実施例 13	3.0	セリウム	5.0
実施例 14	3.0	マグネシウム	5.0
実施例 15	3.0	タングステン	5.0
実施例 16	3.0	モリブデン	5.0
実施例 17	3.0	レニウム	1.0
実施例 18	3.0	レニウム	3.0

【0038】

上記のようにして得た実施例 6～16 及び実施例 3 の触媒について、上記と同様にして CO 除去の実験を行なった。結果を図 3 に示す。図 3 は反応温度 350℃で CO を CO₂ に転化させて除去するにあたって、CO が CH₄ へ転化されず CO₂ に転化される率である反応選択率を示すものであり、実施例 6～16 の触媒は、白金のみを担持する実施例 3 のものよりも反応選択率が高いことが確認される。

【0039】

(実施例 17)

上記の (実施例 1～5) で調製したジルコニア担体を湯浴上の蒸発皿に所定量入れ、これに純水を混ぜて馴染ませた。ここに過レニウム酸アンモニウム (三津和化学薬品株式会社製) の水溶液を加え、さらに純水を加えて所定濃度になるようにした。これを湯浴上で攪拌しながら、水分の蒸発に伴って蒸発皿の壁面に付着する金属塩を純水で洗い落とし、約 100℃で 15 時間以上乾燥させ、ジルコニア担体にレニウムを担持させた。次に、このレニウムを担持させたジルコニア

担体を用い、上記の（実施例 1～5）と同様にして白金を担持させ、白金を 3.0 重量%の担持量で、レニウムを 1.0 重量%の担持量でジルコニア担体にそれぞれ担持させた CO 除去用触媒を得た。

【0040】

（実施例 18）

過レニウム酸アンモニウム（三津和化学薬品株式会社製）の水溶液の添加量を調整するようにした他は上記実施例（実施例 17）と同様にして、白金を 3.0 重量%の担持量で、レニウムを 3.0 重量%の担持量でジルコニア担体にそれぞれ担持させた CO 除去用触媒を得た。

【0041】

上記のようにして得た実施例 17, 18 及び実施例 3、比較例の触媒について、上記と同様にして CO 除去の実験を行なった。結果を図 4 に示す。図 4 にみられるように、実施例 17, 18 の触媒は高い活性を有し、特に 250℃以下の低温で高活性であることが確認される。

【0042】

（実施例 19）

上記の（実施例 1～5）で調製したジルコニア担体を湯浴上の蒸発皿に所定量入れ、これに適当量の純水を混ぜて馴染ませた。ここに塩化白金酸水溶液（ナカライテスク株式会社製）を加え、さらに純水を加えて所定濃度になるようにした。これを湯浴上で攪拌しながら、水分の蒸発に伴って蒸発皿の壁面に付着する金属塩を純水で洗い落とし、1 時間蒸発乾固させ、得られた乾固形物を約 100℃で 15 時間以上乾燥させた。

【0043】

この様にして得られた触媒を熱水（約 100℃）中で約 1 時間攪拌し、その後触媒を沈殿させて濾過を行った。この操作を濾液が透明になるまで繰り返した。次に濾過した触媒を 15 時間以上乾燥させた。次に、手動式油圧圧縮機を用いて約 3600 kg/cm^2 の圧力で 10 秒程プレスし、得られたペレットを 0.5～1.0 mm の粒径に破碎してジルコニア担体に 3.0 重量%の白金を担持させた CO 除去用触媒を得た。

【 0 0 4 4 】

上記の様に得られた実施例 1 9 について、実施例 3、実施例 4、比較例の触媒について行った触媒の活性経時変化と同様の実験を行った。結果を図 5 に示す。図 5 にみられるように、実施例 1 9 の触媒は比較例はもちろん、実施例 3、実施例 4 よりもさらに高い活性を有し、触媒の活性も実施例 3、実施例 4 と同様に劣化しないことが確認される。

【 0 0 4 5 】

【発明の効果】

上記のように本発明の請求項 1 に係る水素ガス中の CO 除去用触媒は、ジルコニア担体に、少なくとも白金を担持させて成ることを特徴とするものであり、水素ガス中の CO を広い温度範囲で効率良く除去することができ、起動・停止を繰り返す小型で可搬型の燃料電池発電システムに容易に適用することができるものである。

【 0 0 4 6 】

また請求項 2 の発明は、上記請求項 1 において、白金の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0. 1 ~ 1 0 重量%であることを特徴とするものであり、白金による CO 除去の触媒活性を有効に得ることができるものである。

【 0 0 4 7 】

また請求項 3 の発明は、ジルコニア担体に上記白金の他に、レニウムを担持させて成ることを特徴とするものであり、CO 除去の触媒活性を高めることができると共に、メタネーション反応が起こることを防止することができるものである。

【 0 0 4 8 】

また請求項 4 の発明は、上記レニウムの担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0. 1 ~ 1 0 重量%であることを特徴とするものであり、メタネーション反応を防ぐ効果を有効に得ることができるものである。

【 0 0 4 9 】

また請求項 5 の発明は、ジルコニア担体に白金の他に、イットリウム、カルシウム、クロム、サマリウム、セリウム、タンゲステン、ネオジウム、プラセオジ

ム、マグネシウム、モリブデン、ランタンから選ばれる少なくとも一種の金属を担持させて成ることを特徴とするものであり、CO除去の触媒活性を高めることができると共に、メタネーション反応が起こることを防止することができるものである。

【0050】

また請求項6の発明は、上記請求項5の金属の担持量が、ジルコニア担体重量に対して、0.1～10重量%であることを特徴とするものであり、メタネーション反応を防ぐ効果を有効に得ることができるものである。

【0051】

また請求項7の発明は、上記請求項1から請求項6の触媒に、さらに熱水処理が行われていることを特徴とするものであり、熱水処理によって塩素イオン等を除去することができ、触媒の活性をさらに高めることができるものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】

実施例1～5及び比較例における反応温度とCO転化率の関係を示すグラフである。

【図2】

実施例3、4及び比較例における反応時間とCO転化率の関係を示すグラフである。

【図3】

実施例3及び実施例6～16における反応選択率を示すグラフである。

【図4】

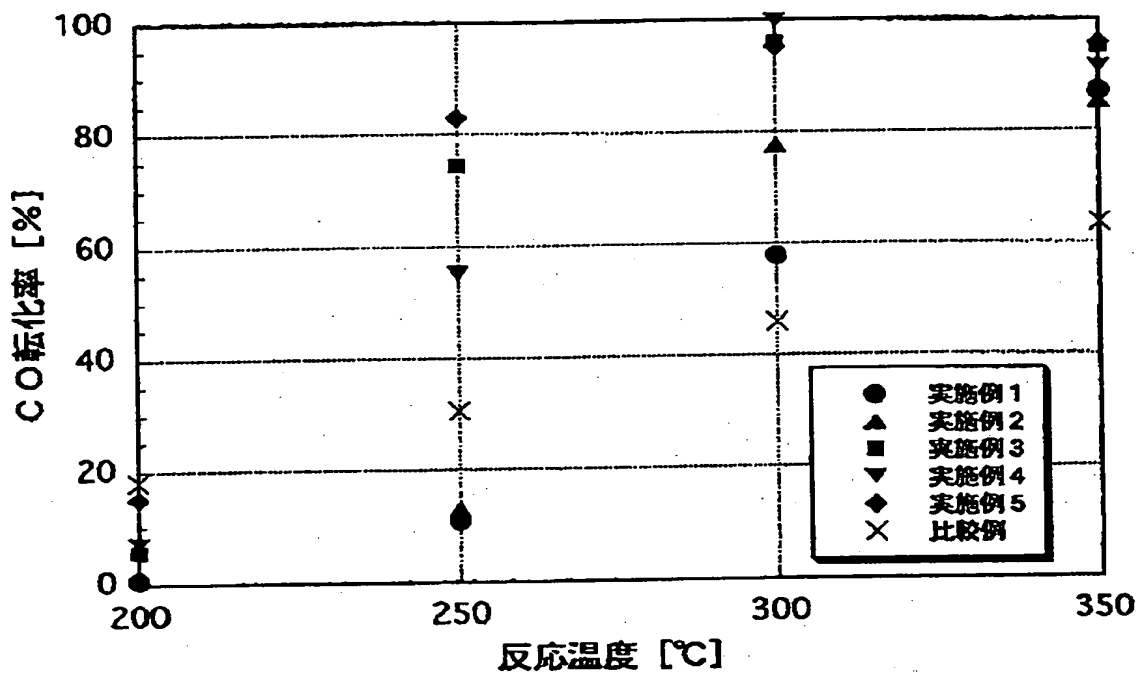
実施例3、17、18及び比較例における反応温度とCO転化率の関係を示すグラフである。

【図5】

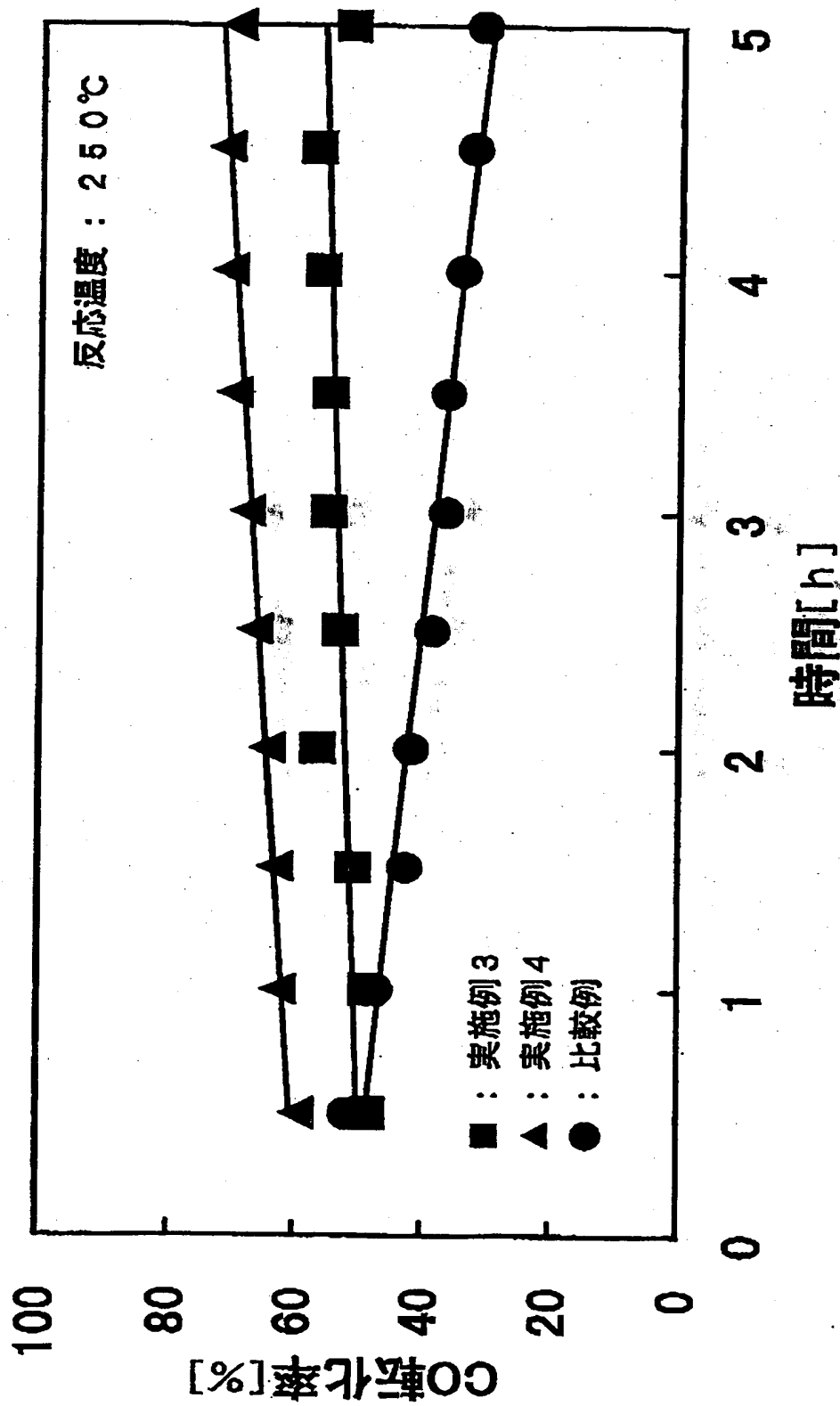
実施例19、3、4及び比較例における反応時間とCO転化率の関係を示すグラフである。

【書類名】 図面

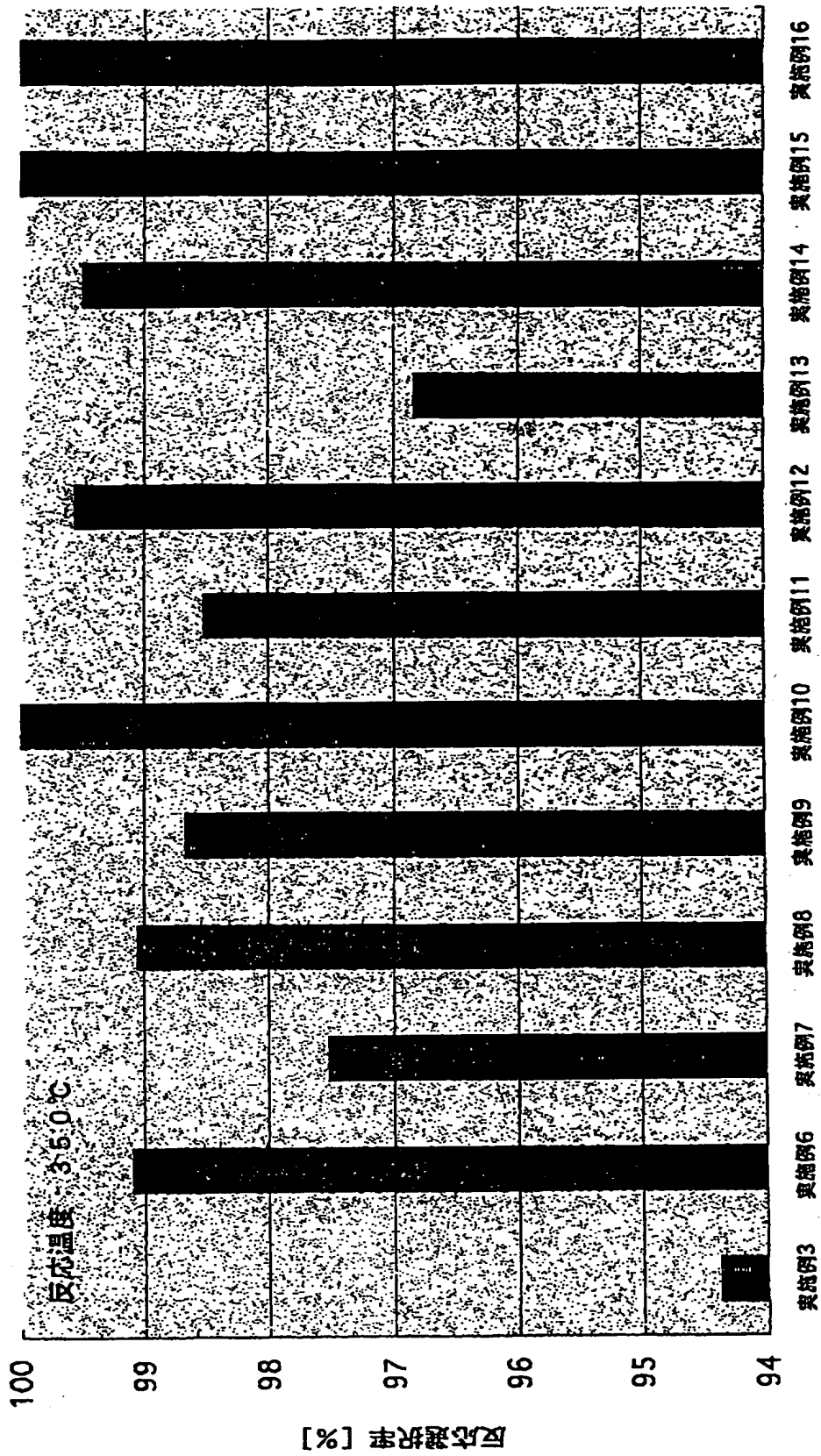
【図 1】



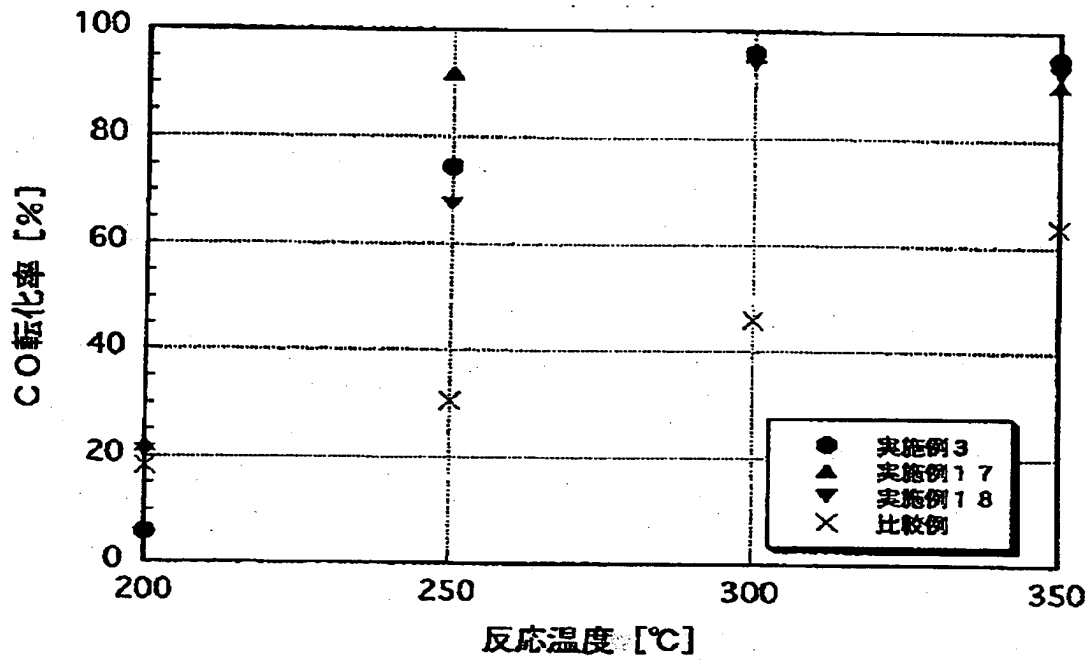
【図2】



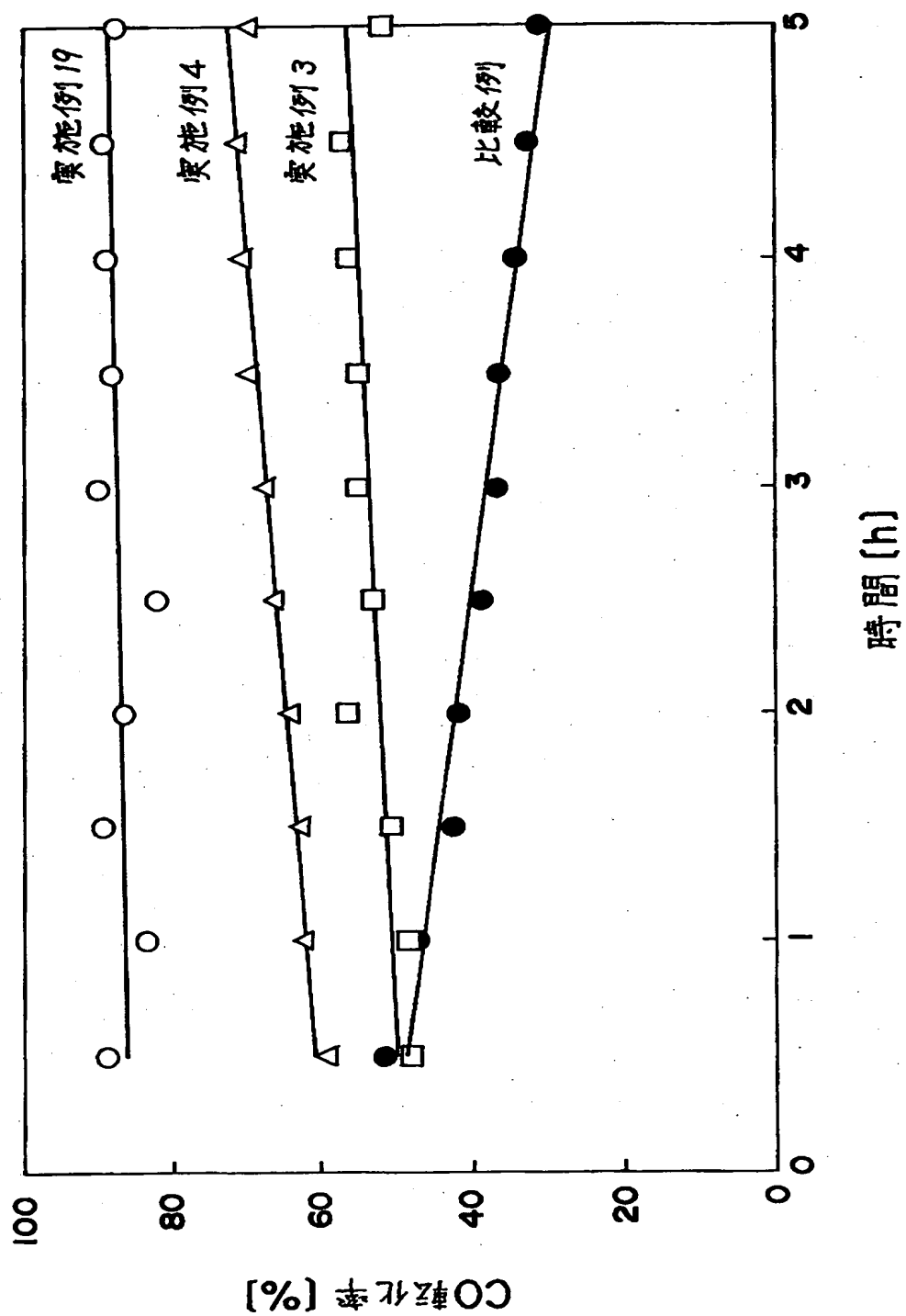
【図 3】



【図4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水素ガス中のCOを広い温度範囲で効率良く除去することができる水素ガス中のCO除去用触媒を提供する。

【解決手段】 ジルコニア担体に、少なくとも白金を担持させてCO除去用触媒を調製する。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	平成 11 年 特許願 第 194104 号
受付番号	59900655601
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成 11 年 7 月 14 日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】

000005832

【住所又は居所】

大阪府門真市大字門真 1048 番地

【氏名又は名称】

松下電工株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】

100087767

【住所又は居所】

大阪市北区梅田 1 丁目 12 番 17 号 梅田第一生命ビル 5 階 北斗特許事務所

【氏名又は名称】

西川 恵清

【選任した代理人】

【識別番号】

100085604

【住所又は居所】

大阪市北区梅田 1 丁目 12 番 17 号 梅田第一生命ビル 5 階 北斗特許事務所

【氏名又は名称】

森 厚夫

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005832]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府門真市大字門真1048番地

氏 名 松下電工株式会社